

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2016-183263

(P2016-183263A)

(43) 公開日 平成28年10月20日(2016.10.20)

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード (参考)
C08L	9/00	(2006.01)	C08L	9/00		4J002
C08K	3/36	(2006.01)	C08K	3/36		
C08K	9/12	(2006.01)	C08K	9/12		
B60C	1/00	(2006.01)	B60C	1/00	A	

審査請求 未請求 請求項の数 9 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2015-64423 (P2015-64423)	(71) 出願人	000006714
(22) 出願日	平成27年3月26日 (2015.3.26)		横浜ゴム株式会社
			東京都港区新橋5丁目36番11号
		(74) 代理人	110001368
			清流国際特許業務法人
		(74) 代理人	100129252
			弁理士 昼間 孝良
		(74) 代理人	100155033
			弁理士 境澤 正夫
		(74) 代理人	100138287
			弁理士 平井 功
		(72) 発明者	築島 新
			神奈川県平塚市追分2番1号 横浜ゴム株 式会社 平塚製造所内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シリカ組成物

(57) 【要約】

【課題】 ジェン系ゴムに対するシリカの分散性および加工性を従来レベル以上に向上するようにしたシリカ組成物を提供する。

【解決手段】 シリカ100重量部に対し、水素結合性界面活性剤1～100重量部を複合化したことを特徴する。このシリカ組成物は、シリカ100重量部および水素結合性界面活性剤1～100重量部を、バンバリーミキサー中で混練することにより製造することができる。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

シリカ 100 重量部に対し、水素結合性界面活性剤 1～100 重量部を複合化したことを特徴するシリカ組成物。

【請求項 2】

前記水素結合性界面活性剤のシリカへの吸着率が、50～100 重量%であることを特徴する請求項 1 に記載のシリカ組成物。

【請求項 3】

前記水素結合性界面活性剤が、水素結合供与性の官能基を有することを特徴する請求項 1 または 2 に記載のシリカ組成物。

【請求項 4】

前記水素結合性界面活性剤が、長鎖アルキルアルコール、長鎖脂肪酸、長鎖脂肪酸アミド、グリセリン長鎖脂肪酸エステル、長鎖アルキル 1 級アミン、長鎖アルキル 2 級アミン、長鎖アルキルリン酸モノエステル、長鎖アルキルリン酸ジエステルから選ばれることを特徴する請求項 3 に記載のシリカ組成物。

【請求項 5】

前記水素結合性界面活性剤が、水素結合受容性の官能基を有することを特徴する請求項 1 または 2 に記載のシリカ組成物。

【請求項 6】

前記水素結合性界面活性剤が、長鎖アルキルエーテル、長鎖アルキルケトン、長鎖脂肪酸エステル、長鎖アルキル 3 級アミン、長鎖アルキル硫酸エステル、長鎖アルキルリン酸トリエステルから選ばれることを特徴する請求項 5 に記載のシリカ組成物。

【請求項 7】

請求項 1～6 のいずれかに記載のシリカ組成物の製造方法であって、前記シリカ 100 重量部および前記水素結合性界面活性剤 1～100 重量部を、パンバリーミキサー中で混練することを特徴するシリカ組成物の製造方法。

【請求項 8】

ジエン系ゴム 100 重量部に請求項 1～6 のいずれかに記載のシリカ組成物 30～200 重量部を配合したタイヤ用ゴム組成物の製造方法であって、前記シリカ 100 重量部および前記水素結合性界面活性剤 1～100 重量部を、パンバリーミキサー中で混練することにより前記シリカ組成物を調製した後、これに前記ジエン系ゴムを加えて混練することを特徴するタイヤ用ゴム組成物の製造方法。

【請求項 9】

請求項 8 に記載の製造方法により得られたタイヤ用ゴム組成物でトレッド部を形成した空気入りタイヤ。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、ジエン系ゴムに対するシリカの分散性および加工性を従来レベル以上に向上するようにしたシリカ組成物に関する。

【背景技術】**【0002】**

空気入りタイヤの転がり抵抗およびウェットグリップ性能を向上するため、タイヤ用ゴム組成物にシリカを配合し、その動的粘弾性を改質することが行われる。しかしシリカはジエン系ゴムに対する分散性が悪いためその改質効果を十分に発現させることは困難であった。

【0003】

ジエン系ゴムに対するシリカの分散性を改良するため種々のシランカップリング剤が提案されている（例えば特許文献 1 参照）。しかし、需要者が空気入りタイヤの転がり抵抗の低減およびウェットグリップ性能の向上に求める要求は近年ますます高くなり、加工性

10

20

30

40

50

を確保しながら、シリカの分散性をより優れたものにすることがより一層強く求められている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献1】特許第5394026号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

本発明の目的は、ジエン系ゴムに対するシリカの分散性および加工性を従来レベル以上に向上するようにしたシリカ組成物を提供することにある。

10

【課題を解決するための手段】

【0006】

上記目的を達成する本発明のシリカ組成物は、シリカ100重量部に対し、水素結合性界面活性剤1～100重量部を複合化したことを特徴する。

【発明の効果】

【0007】

本発明のシリカ組成物は、シリカ100重量部に水素結合性界面活性剤1～100重量部を複合化したので、水素結合性界面活性剤がシリカ表面に吸着し、その加工性を維持しながらジエン系ゴムに対する分散性を従来レベル以上に向上することができる。

20

【0008】

前記水素結合性界面活性剤のシリカへの吸着率は、50～100重量%であるとよい。

【0009】

前記水素結合性界面活性剤としては、水素結合供与性の官能基を有する界面活性剤が挙げられる。このような水素結合性界面活性剤として、長鎖アルキルアルコール、長鎖脂肪酸、長鎖脂肪酸アミド、グリセリン長鎖脂肪酸エステル、長鎖アルキル1級アミン、長鎖アルキル2級アミン、長鎖アルキルリン酸モノエステル、長鎖アルキルリン酸ジエステルから選ぶことができる。

【0010】

前記水素結合性界面活性剤としては、水素結合受容性の官能基を有する界面活性剤が挙げられる。このような水素結合性界面活性剤は、長鎖アルキルエーテル、長鎖アルキルケトン、長鎖脂肪酸エステル、長鎖アルキル3級アミン、長鎖アルキル硫酸エステル、長鎖アルキルリン酸トリエステルから選ぶことができる。

30

【0011】

上述したシリカ組成物の製造方法は、前記シリカ100重量部および前記水素結合性界面活性剤1～100重量部を、バンバリーミキサー中で混練することできる。

【0012】

ジエン系ゴム100重量部に上述したシリカ組成物30～200重量部を配合したタイヤ用ゴム組成物の製造方法として、前記シリカ100重量部および前記水素結合性界面活性剤1～100重量部を、バンバリーミキサー中で混練することにより前記シリカ組成物を調製した後、これに前記ジエン系ゴムを加えて混練する製造方法がよい。

40

【0013】

上記製造方法により得られたタイヤ用ゴム組成物でトレッド部を形成した空気入りタイヤは、シリカが良好に分散しているので、転がり抵抗が小さく燃費性能が優れるとともにウェットグリップ性が優れる。またゴム組成物の加工性が優れるため、品質が高い空気入りタイヤを安定して得ることができる。

【発明を実施するための形態】

【0014】

本発明のシリカ組成物を組成するシリカは、タイヤ用ゴム組成物に通常使用されるものであればよく、湿式法シリカ、乾式法シリカのいずれの種類でもよい。

50

【0015】

またシリカの窒素吸着比表面積 N_2SA は、特に制限されるものではなく、好ましくは N_2SA が $50 \sim 400 \text{ m}^2/\text{g}$ 、より好ましくは $75 \sim 300 \text{ m}^2/\text{g}$ であるとよい。 N_2SA を $75 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上にするることにより、ウェットグリップ性能をより優れたものにすることができる。また N_2SA を $300 \text{ m}^2/\text{g}$ 以下にするることによりシリカの分散性を一層改良することができる。シリカの N_2SA は、JIS K6217-2に準拠して、測定するものとする。

【0016】

本発明のシリカ組成物は、上述したシリカに水素結合性界面活性剤を複合化した組成物である。シリカ表面に水素結合性界面活性剤を吸着させることにより、その加工性を維持しながらジエン系ゴムに対する分散性を従来レベル以上に向上することができる。

10

【0017】

水素結合性界面活性剤を複合化する量は、シリカ100重量部に対し1～100重量部、好ましくは3～50重量部である。水素結合性界面活性剤を複合化する量が1重量部未満であると、シリカの分散性を改良する効果が十分に得られない。また水素結合性界面活性剤が100重量部を超えると、シリカの分散性が頭打ちになるとともに、シリカ組成物を配合したゴム組成物の物性に影響を及ぼす。

【0018】

本発明において、水素結合性界面活性剤のシリカに対する吸着率は、好ましくは50～100重量%、より好ましくは75～100重量%であるとよい。シリカへの水素結合性界面活性剤の吸着率が50重量%未満であると、シリカの分散性を改良する効果が十分に得られない。本明細書において、水素結合性界面活性剤の吸着率は、水素結合性界面活性剤の複合化量、およびシリカ組成物をアセトンで抽出したときの重量減少量から算出するものとする。

20

【0019】

本発明において、界面活性剤は、親水性および疎水性の両方の構成部位を有する両親媒性物質であるものをいう。また水素結合性界面活性剤は、水素結合性の官能基を有する界面活性剤をいう。水素結合性界面活性剤として、水素結合供与性の界面活性剤および水素結合受容性の界面活性剤が挙げられる。

【0020】

水素結合供与性の界面活性剤として、例えば長鎖アルキルアルコール、長鎖脂肪酸、長鎖脂肪酸アミド、グリセリン長鎖脂肪酸エステル、長鎖アルキル1級アミン、長鎖アルキル2級アミン、長鎖アルキルリン酸モノエステル、長鎖アルキルリン酸ジエステル等を例示することができる。本明細書において、長鎖アルキルとは、炭素数が好ましくは8～30、より好ましくは10～24であるアルキル基であるものとする。長鎖アルキルは直鎖状、分岐状のいずれでもよい。また長鎖脂肪酸とは、炭素数が好ましくは8～30、より好ましくは10～24の飽和または不飽和の脂肪酸であるものとする。長鎖脂肪酸は直鎖状、分岐状のいずれでもよい。

30

【0021】

長鎖アルキルアルコールとしては、例えばオクタノール、ノナノール、デカノール、ウンデカノール、ドデカノール、トリデカノール、テトラデカノール、ペンタデカノール、ヘキサデカノール、ヘプタデカノール、オクタデカノール、ノナデカノール、エイコサノール、ヘネイコサノール、ドコサノール、トリコサノール、テトラコサノール、2-エチルヘキサノール、2-エチルヘプタノール、2-エチルオクタノール、2-エチルノナノール、2-エチルデカノール、2-エチルドデカノール、2-エチルテトラデカノール、2-エチルヘキサデカノール、イソオクタノール、イソデカノール、イソドデカノール、イソテトラデカノール、イソヘキサデカノール、イソオクタデカノール、等を例示することができる。

40

【0022】

長鎖脂肪酸としては、例えばオクタン酸、ノナン酸、デカン酸、ドデカン酸（ラウリン

50

酸)、ウンデカン酸、テトラデカン酸(ミリスチン酸)、ペンタデカン酸(ペンタデシル酸)、ヘキサデカン酸(パルミチン酸)、ヘプタデカン酸(マルガリン酸)、オクタデカン酸(ステアリン酸)、エイコサン酸(アラキジン酸)、ドコサン酸(ベヘン酸)、テトラコサン酸(リグノセリン酸)、9-ヘキサデセン酸(パルミトレイン酸)、cis-9-オクタデセン酸(オレイン酸)、11-オクタデセン酸(バクセン酸)、パウリン酸、リノール酸、リノレン酸、エレオステアリン酸、エイコサジエン酸、アラキドン酸、エライジン酸、エルカ酸、ネルボン酸、2-エチルヘキサン酸、イソオクタン酸、イソノナン酸、イソデカン酸、イソステアリン酸等を例示することができる。

【0023】

長鎖脂肪酸アミドとしては、例えばカプリル酸アミド、ラウリル酸アミド、ミリスチン酸アミド、パルチミン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、オレイン酸アミド、リノール酸アミド、リノレン酸アミド等を例示することができる。

10

【0024】

グリセリン長鎖脂肪酸エステルとしては、例えばグリセリンカプリル酸エステル、グリセリンラウリル酸エステル、グリセリンステアリン酸エステル、グリセリンオレイン酸エステル、グリセリンベヘン酸エステル、グリセリンヒドロキシステアリン酸エステル、グリセリンリノール酸エステル、グリセリンリノレン酸エステル等を例示することができる。

【0025】

長鎖アルキル1級アミンとしては、例えばオクチルアミン、デシルアミン、ドデシルアミン、テトラデシルアミン、ヘキサデシルアミン、オクタデシルアミン、エイコシルアミン、ドコシルアミン等を例示することができる。

20

【0026】

長鎖アルキル2級アミンとしては、例えばN-メチルオクチルアミン、N-エチルオクチルアミン、N-メチルデシルアミン、N-エチルデシルアミン、N-メチルドデシルアミン、N-エチルドデシルアミン、N-メチルテトラデシルアミン、N-エチルテトラデシルアミン、N-メチルヘキサデシルアミン、N-エチルヘキサデシルアミン、N-メチルオクタデシルアミン、N-エチルオクタデシルアミン、N-メチルエイコシルアミン、N-エチルエイコシルアミン、N-メチルドコシルアミン、N-エチルドコシルアミン等を例示することができる。

30

【0027】

長鎖アルキルリン酸モノエステルとしては、例えばオクチルホスホン酸、デシルホスホン酸、ドデシルホスホン酸、テトラデシルホスホン酸、ヘキサデシルホスホン酸、オクタデシルホスホン酸、エイコシルホスホン酸、ドコシルホスホン酸等を例示することができる。

【0028】

長鎖アルキルリン酸ジエステルとしては、例えばオクチルホスホン酸メチル、オクチルホスホン酸エチル、デシルホスホン酸メチル、デシルホスホン酸エチル、ドデシルホスホン酸メチル、ドデシルホスホン酸エチル、テトラデシルホスホン酸メチル、テトラデシルホスホン酸エチル、ヘキサデシルホスホン酸メチル、ヘキサデシルホスホン酸エチル、オクタデシルホスホン酸メチル、オクタデシルホスホン酸エチル、エイコシルホスホン酸メチル、エイコシルホスホン酸エチル、ドコシルホスホン酸メチル、ドコシルホスホン酸エチル等を例示することができる。

40

【0029】

水素結合受容性の界面活性剤として、例えば長鎖アルキルエーテル、長鎖アルキルケトン、長鎖脂肪酸エステル、長鎖アルキル3級アミン、長鎖アルキル硫酸エステル、長鎖アルキルリン酸トリエステル等を例示することができる。

【0030】

長鎖アルキルエーテルとしては、例えばオクチルメチルエーテル、オクチルエチルエー

50

テル、ジオクチルエーテル、デシルメチルエーテル、デシリエチルエーテル、ジデシルエーテル、ドデシルメチルエーテル、ドデシリエチルエーテル、ジドデシルエーテル、テトラデシルメチルエーテル、テトラデシリエチルエーテル、ジテトラデシルエーテル、ヘキサデシルメチルエーテル、ヘキサデシリエチルエーテル、ジヘキサデシルエーテル、オクタデシルメチルエーテル、オクタデシリエチルエーテル、ジオクタデシルエーテル、エイコシルメチルエーテル、エイコシリエチルエーテル、ジエイコシルエーテル、ドコシルメチルエーテル、ドコシリエチルエーテル、ジドコシルエーテル等を例示することができる。

【0031】

長鎖アルキルケトンとしては、例えばオクチルメチルケトン、オクチリエチルケトン、ジオクチルケトン、デシルメチルケトン、デシリエチルケトン、ジデシルケトン、ドデシルメチルケトン、ドデシリエチルケトン、ジドデシルケトン、テトラデシルメチルケトン、テトラデシリエチルケトン、ジテトラデシルケトン、ヘキサデシルメチルケトン、ヘキサデシリエチルケトン、ジヘキサデシルケトン、オクタデシルメチルケトン、オクタデシリエチルケトン、ジオクタデシルケトン、エイコシルメチルケトン、エイコシリエチルケトン、ジエイコシルケトン、ドコシルメチルケトン、ドコシリエチルケトン、ジドコシルケトン等を例示することができる。

10

【0032】

長鎖脂肪酸エステルとしては、例えばカプリル酸メチル、カプリル酸エチル、ラウリル酸メチル、ラウリル酸エチル、ミリスチン酸メチル、ミリスチン酸エチル、パルチミン酸メチル、パルチミン酸エチル、ステアリン酸メチル、ステアリン酸エチル、ベヘン酸メチル、ベヘン酸エチル、ヒドロキシステアリン酸メチル、ヒドロキシステアリン酸エチル、エルカ酸メチル、エルカ酸エチル、オレイン酸メチル、オレイン酸エチル、リノール酸メチル、リノール酸エチル、リノレン酸メチル、リノレン酸エチル等を例示することができる。

20

【0033】

長鎖アルキル3級アミンとしては、例えばN，N-ジメチルオクチルアミン、N，N-ジエチルオクチルアミン、N，N-ジメチルデシルアミン、N，N-ジエチルデシルアミン、N，N-ジメチルドデシルアミン、N，N-ジエチルドデシルアミン、N，N-ジメチルテトラデシルアミン、N，N-ジエチルテトラデシルアミン、N，N-ジメチルヘキサデシルアミン、N，N-ジエチルヘキサデシルアミン、N，N-ジメチルオクタデシルアミン、N，N-ジエチルオクタデシルアミン、N，N-ジメチルエイコシルアミン、N，N-ジエチルエイコシルアミン、N，N-ジメチルドコシルアミン、N，N-ジエチルドコシルアミン等を例示することができる。

30

【0034】

長鎖アルキル硫酸エステルとしては、例えばオクチル硫酸メチル、オクチル硫酸エチル、デシル硫酸メチル、デシル硫酸エチル、ドデシル硫酸メチル、ドデシル硫酸エチル、テトラデシル硫酸メチル、テトラデシル硫酸エチル、ヘキサデシル硫酸メチル、ヘキサデシル硫酸エチル、オクタデシル硫酸メチル、オクタデシル硫酸エチル、エイコシル硫酸メチル、エイコシル硫酸エチル、ドコシル硫酸メチル、ドコシル硫酸エチル等を例示することができる。

40

【0035】

長鎖アルキルリン酸トリエステルとしては、例えば例えばオクチルホスホン酸ジメチル、オクチルホスホン酸ジエチル、デシルホスホン酸ジメチル、デシルホスホン酸ジエチル、ドデシルホスホン酸ジメチル、ドデシルホスホン酸ジエチル、テトラデシルホスホン酸ジメチル、テトラデシルホスホン酸ジエチル、ヘキサデシルホスホン酸ジメチル、ヘキサデシルホスホン酸ジエチル、オクタデシルホスホン酸ジメチル、オクタデシルホスホン酸ジエチル、エイコシルホスホン酸ジメチル、エイコシルホスホン酸ジエチル、ドコシルホスホン酸ジメチル、ドコシルホスホン酸ジエチル等を例示することができる。

50

【0036】

本発明のシリカ組成物は、バンバリーミキサー中でシリカおよび水素結合性界面活性剤を混練することによりシリカ組成物を製造することができる。バンバリーミキサーの運転条件は、特に制限されるものではなく、通常のタイヤ用ゴム組成物を混練するときの条件と同様にすることができる。すなわち、シリカ組成物の製造方法は、バンバリーミキサー中にシリカ100重量部および水素結合性界面活性剤1～100重量部を投入し、混練することができる。

【0037】

またシリカ組成物を配合したタイヤ用ゴム組成物を製造するには、バンバリーミキサー中で調製されたシリカ組成物に、ジエン系ゴムを加え混練するとよい。ゴム組成物の製造条件は、通常のタイヤ用ゴム組成物を混練するときの条件と同様にすることができる。

10

【0038】

タイヤ用ゴム組成物は、ジエン系ゴム100重量部に上述したシリカ組成物30～200重量部、好ましくは50～150重量部を配合したものである。シリカ組成物の配合量が50重量部以上により、ウェットグリップ性能を優れたものにすることができる。またシリカ組成物の配合量を150重量部以下により、シリカの分散性を良好にするとともに、耐摩耗性を確保することができる。

【0039】

本発明のタイヤ用ゴム組成物は、そのゴム成分をジエン系ゴムで構成する。ジエン系ゴムとしては、天然ゴム、イソプレングム、ブタジエンゴム、スチレンブタジエンゴム、アクリロニトリルブタジエンゴム、ブチルゴム、クロロプレングム等を例示することができる。なかでもスチレンブタジエンゴムブタジエンゴム、天然ゴムが好ましい。これらは、単独または任意のブレンドとして使用することができる。

20

【0040】

タイヤ用ゴム組成物は、シランカップリング剤を配合することにより、シリカの分散性をさらに向上することができる。シランカップリング剤の配合量は、シリカ配合量に対して好ましくは3～15重量%、より好ましくは5～12重量%にするとよい。シランカップリング剤の配合量がシリカ重量の3重量%未満の場合、シリカの分散性をさらに改良する効果が十分に得られない。また、シランカップリング剤が15重量%を超えると、シランカップリング剤同士が重合してしまい、所望の効果を達成できなくなる。またゴム組成物の調製時にロールへの滞留が多くなる。

30

【0041】

シランカップリング剤としては、特に制限されるものではないが、硫黄含有シランカップリング剤が好ましく、例えばビスー（3-トリエトキシシリルプロピル）テトラサルファイド、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）ジサルファイド、3-トリメトキシシリルプロピルベンゾチアゾールテトラサルファイド、γ-メルカプトプロピルトリエトキシシラン、3-オクタノイルチオプロピルトリエトキシシラン等を例示することができる。

【0042】

タイヤ用ゴム組成物には、上記以外の他の配合剤を添加することができる。他の配合剤としては、シリカ以外の他の補強性充填剤、加硫又は架橋剤、加硫促進剤、老化防止剤、液状ポリマー、熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂など、一般的に空気入りタイヤに使用される各種配合剤を例示することができる。これら配合剤の配合量は本発明の目的に反しない限り、従来の一般的な配合量にすることができる。また混練機としては、通常のゴム用混練機械、例えば、バンバリーミキサー、ニーダー、ロール等を使用することができる。

40

【0043】

他の補強性充填剤としては、例えばカーボンブラック、クレイ、マイカ、タルク、炭酸カルシウム、水酸化アルミニウム、酸化アルミニウム、酸化チタン等を例示することができる。なかでもシリカが好ましい。

【0044】

本発明のタイヤ用ゴム組成物は、空気入りタイヤのトレッド部、サイドウォール部、ビ

50

ード部、各種コード被覆用ゴム等に好適に使用することができる。なかでもトッド部に使用するのがよい。タイヤ用ゴム組成物でトレッド部を形成した空気入りタイヤは、シリカが良好に分散しているので、転がり抵抗が小さく燃費性能が優れるとともにウェットグリップ性が優れる。またゴム組成物の加工性が優れるため、品質が高い空気入りタイヤを安定して製造することができる。

【0045】

以下、実施例によって本発明を更に説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

【実施例】

【0046】

表1～3に示す配合からなる23種類のシリカ組成物（組成物1～23）を、各種界面活性剤（化合物1～16）およびシランカップリング剤から選ばれるいずれかをシリカとともに1.7Lの密閉式バンパリーミキサーで5分間、混練りして調製した。なおシリカ組成物23は、シリカおよびシランカップリング剤Si69を混練したものである。得られたシリカ組成物における界面活性剤の吸着率を測定し表1～3に示した。

【0047】

表4に示す配合剤を共通配合とし、表1～3に示す配合からなる28種類のタイヤ用ゴム組成物（実施例1～16、比較例1～12）を、硫黄および加硫促進剤を除く成分を、1.7Lの密閉式バンパリーミキサーで5分間、混練りした後、ミキサーから放出して室温冷却させた。これを1.7Lの密閉式バンパリーミキサーに投入し、硫黄および加硫促進剤を加えて混合することにより、タイヤ用ゴム組成物を調製した。なお実施例1～16および比較例2～8の製造に当たり、既に1.7Lの密閉式バンパリーミキサー中で調製されたシリカ組成物1～23に、硫黄および加硫促進剤を除く成分を投入し混練を行った。また表1～3のSBR（スチレンブタジエンゴム）の欄に、製品の配合量に加え、括弧内に油展成分を除く正味のSBRの配合量を記載した。また表4に記載した配合剤の配合量は、表1～3に記載したジエン系ゴム100重量部に対する重量部で示した。

【0048】

得られた28種類のタイヤ用ゴム組成物について、ムーニー粘度およびペイン効果を下記の測定方法により評価した。

【0049】

ムーニー粘度

得られたゴム組成物のムーニー粘度をJIS K6300-1:2001に準拠して、ムーニー粘度計にてL形ロータを使用し、予熱時間1分、ロータの回転時間4分、100℃の条件で測定した。得られた結果は、比較例1の値を100とする指数で表わし表1の「ムーニー粘度」の欄に示した。この指数が小さいほど粘度が低く、混合加工性が良好であることを意味する。

【0050】

<ペイン効果>

得られたゴム組成物を所定の金型中で160℃、20分間、プレス加硫し試験片を得た。この試験片を、歪せん断応力測定機（αテクノロジー社製RPA2000）を用い、歪0.28%の歪せん断弾性率 $[G'0.28]$ （MPa）と歪30.0%の歪せん断弾性率 $[G'30.0]$ （MPa）とを測定し、その差 $[G'0.28 - G'30.0]$ （MPa）をペイン効果として算出した。得られた結果は、比較例1の値を100とする指数で表わし表1の「ペイン効果」の欄に示した。この指数が小さいほどペイン効果が小さくシリカの分散性に優れることを意味する。

【0051】

10

20

30

40

【表 1】

	シリカ組成物の種類	比較例1	比較例2	実施例1	実施例2	比較例3	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7
		—	組成物1	組成物2	組成物3	組成物4	組成物5	組成物6	組成物7	組成物8	組成物9
シリカ組成物	シリカ	—	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	界面活性剤の種類	—	化合物1	化合物1	化合物1	化合物1	化合物2	化合物3	化合物4	化合物5	化合物6
	界面活性剤の配合量	—	0.1	5	20	105	5	5	5	5	5
	界面活性剤の吸着率	—	95	75	75	20	85	85	90	90	80
ゴム組成物	上記シリカ組成物の配合量	—	70.07	73.5	84	143.5	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5
	SBR	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)
	BR	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	シリカ	70	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	カップリング剤	5.6	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2
ゴム組成物の特性	ムーニー粘度	100	100	85	75	105	80	90	95	90	95
	ペイン効果	100	100	90	85	110	85	95	95	85	95

【0052】

10

20

30

40

【表 2】

	実施例8	実施例9	比較例4	実施例10	実施例11	比較例5	実施例12	実施例13	実施例14
シリカ組成物の種類	シリカ組成物の種類	組成物10	組成物11	組成物12	組成物13	組成物14	組成物15	組成物16	組成物17
	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100
	界面活性剤の種類	化合物7	化合物8	化合物9	化合物9	化合物9	化合物9	化合物10	化合物11
	界面活性剤の配合量	5	5	0.1	5	20	105	5	5
	界面活性剤の吸着率	85	80	100	80	75	30	75	70
ゴム組成物	上記シリカ組成物の配合量	73.5	73.5	70.07	73.5	84	143.5	73.5	73.5
	SBR	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)
	BR	20	20	20	20	20	20	20	20
	シリカ	—	—	—	—	—	—	—	—
	カップリング剤	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2
ゴム組成物の特性	ムーニー粘度	85	90	100	90	80	115	85	95
	ペイン効果	85	85	100	90	75	135	90	95

【 0 0 5 3 】

10

20

30

40

【表 3】

	実施例15	実施例16	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
シリカ組成物の種類	組成物19	組成物20	組成物21	組成物22	組成物23	—	—	—	—
シリカ 重量部	100	100	100	100	100	—	—	—	—
界面活性剤の種類	化合物13	化合物14	化合物15	化合物16	カップリング剤	—	—	—	—
界面活性剤の配合量 重量部	5	5	5	5	5	—	—	—	—
界面活性剤の吸着率 重量%	80	70	25	45	—	—	—	—	—
上記シリカ組成物の配合量 重量部	73.5	73.5	73.5	73.5	73.5	—	—	—	—
SBR 重量部	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)	110 (80)
BR 重量部	20	20	20	20	20	20	20	20	20
シリカ 重量部	—	—	—	—	—	70	70	70	70
界面活性剤の種類	—	—	—	—	—	化合物1	化合物2	化合物8	化合物9
界面活性剤の配合量 重量部	—	—	—	—	—	3.5	3.5	3.5	3.5
カップリング剤 重量部	7.2	7.2	7.2	7.2	7.2	5.6	5.6	5.6	5.6
ゴム組成物の特性									
ムーニー粘度 指数	95	90	110	110	110	105	105	105	110
ペイン効果 指数	90	95	105	110	105	105	100	110	105

【0054】

なお、表1～3において使用した原材料の種類を下記に示す。

- ・シリカ：ローディア社製 Zeosil 1165MP、窒素吸着比表面積が165m²/g
- ・SBR：スチレンブタジエンゴム、旭化成社製 SBR E581、スチレンブタジエンゴム100重量部にオイル成分37.5重量部を配合した油展製品、スチレン量が40重量%、ビニル単位量が44重量%、重量平均分子量が126万

10

20

30

40

50

- ・BR：ブタジエンゴム、日本ゼオン社製Nipol BR1220
- ・カップリング剤：硫黄含有シランカップリング剤、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）テトラスルフィド、エポニック社製Si69
- ・化合物1：オクタデシルアルコール
- ・化合物2：ステアリン酸
- ・化合物3：ステアリン酸アミド
- ・化合物4：グリセリンステアリン酸エステル
- ・化合物5：オクタデシルホスホン酸（リン酸モノエステル）
- ・化合物6：オクタデシルホスホン酸エチル（リン酸ジエステル）
- ・化合物7：オクタデシルアミン（1級アミン）
- ・化合物8：N-メチルオクタデシルアミン（2級アミン）
- ・化合物9：オクタデシルエチルエーテル
- ・化合物10：オクタデシルエチルケトン
- ・化合物11：ステアリン酸エチル
- ・化合物12：N，N-ジメチルオクタデシルアミン（3級アミン）
- ・化合物13：オクタデシル硫酸エチル（硫酸エステル）
- ・化合物14：オクタデシルホスホン酸ジエチル（リン酸トリエステル）
- ・化合物15：SDS、ラウリル硫酸ナトリウム
- ・化合物16：CTAB、臭化ヘキサデシルトリメチルアンモニウム

10

【0055】

20

【表4】

ゴム組成物の共通配合	
カーボンブラック	5.0 重量部
ステアリン酸	2.0 重量部
酸化亜鉛	3.0 重量部
老化防止剤	1.5 重量部
プロセスオイル	10.0 重量部
硫黄	2.0 重量部
加硫促進剤1	1.7 重量部
加硫促進剤2	0.4 重量部

30

【0056】

表4において使用した原材料の種類を下記に示す。

- ・カーボンブラック：キャボットジャパン社製ショウブラック339
- ・ステアリン酸：NOFコーポレーション社製ステアリン酸YR
- ・酸化亜鉛：正同化学工業社製亜鉛華3種
- ・老化防止剤：Solutia Europe社製Santoflex 6PPD
- ・プロセスオイル：昭和シェル石油社製エキストラクト4号S
- ・硫黄：軽井沢精錬所社製油処理イオウ
- ・加硫促進剤1：CBZ、大内新興化学社製ノクセラーCZ-G
- ・加硫促進剤2：DPG、Flexsys社製Perkacit DPG

40

【0057】

表1～3から明らかなように、シリカ組成物2，3，5～11，13，16～20を配合した実施例1～16のタイヤ用ゴム組成物は、ムーニー粘度（混合加工性）およびペイン効果（シリカの分散性）に優れることが確認された。

【0058】

比較例2のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤（化合物1）の配合量が1重量部未満

50

であるのでムーニー粘度（混合加工性）およびペイン効果（シリカの分散性）を改良する効果が得られない。

【0059】

比較例3のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤（化合物1）の配合量が100重量部を超える未満であるのでムーニー粘度が大きくなるとともにシリカの分散性が劣る。

【0060】

比較例4のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤（化合物9）の配合量が1重量部未満であるのでムーニー粘度およびシリカの分散性を改良する効果が得られない。

【0061】

比較例5のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤（化合物9）の配合量が100重量部を超える未満であるのでムーニー粘度が大きくなるとともにシリカの分散性が劣る。

10

【0062】

比較例6のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤の代わりにアニオン性界面活性剤SDSをシリカ組成物に配合したので、ムーニー粘度が大きくなるとともにシリカの分散性が劣る。

【0063】

比較例7のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤の代わりにカチオン性界面活性剤CTABをシリカ組成物に配合したので、ムーニー粘度が大きくなるとともにシリカの分散性が劣る。

【0064】

比較例8のゴム組成物は、水素結合性界面活性剤の代わりにシランカップリング剤Si69をシリカ組成物に配合したので、ムーニー粘度が大きくなるとともにシリカの分散性が劣る。

20

【0065】

比較例9～12のゴム組成物は、シリカ組成物を調製することなく、シリカおよび水素結合性界面活性剤を直接ジエン系ゴムに配合し混練したので、ムーニー粘度が大きくなるとともにシリカの分散性が劣る。

フロントページの続き

Fターム(参考) 4J002 AC011 AC031 AC061 AC071 AC081 AC091 BB181 DJ016 EC067 EF057
EH047 EN017 EP017 EW047 FB296 FD016 FD317 GN01